

日本の再処理は何処へ行く

古川 路明

1. はじめに

核燃料再処理（再処理）は使用済核燃料について考える際に最も重要な検討課題であり、「核燃料サイクル」は再処理がなくては成り立たない。現状では、プルトニウムの回収のみがその目的と考えるとよい。プルトニウムの使い道がはっきりしない状態で、なぜ再処理をしなければならないのか。

ここでは、1)「核燃料サイクル」と再処理、2)六ヶ所村再処理施設と問題点、3)再処理にともなう放射能放出および4)再処理の安全性を取り上げる。

2. 「核燃料サイクル」と再処理

原子炉の中で核燃料中の全ての核分裂性物質（ウラン-235、²³⁹Puなど）は利用できない。原子炉から取り出した使用済核燃料を再処理に回すのが日本の方針である。再処理は核燃料サイクルの中で最も重要な工程であり、燃え残ったウラン-235とプルトニウムの回収を目的としている。

電気出力100万キロワットの軽水炉を一年間運転した際の物質の動きを追ってみる（図1¹⁾）。

1)ウランの抽出 ウラン鉱（ウラン含有量、0.1%）20万トンから硫酸処理によってウランが取り出される。この際にラジウム 226(²²⁶Ra、半減期1622年)、ポロニウム 210(²¹⁰Po、138日)などを含む残土または鉱滓が現地に残る。どれも放射能毒性が高いが、気体であるラドン 222(²²²Rn、3.8日)と崩壊生成物(ポロニウム 210など)の影響が大きく、ウラン産出国では深刻な問題となっている。

2)同位体濃縮 取り出されたウランは六フッ化ウラン(UF₆)に転換され、遠心分離法によってウラン-235の同位体含有量をも高める工程に回される。低濃縮ウラン(ウラン-235含有量、3.0%)30トンが得られるが、同時に劣化ウラン

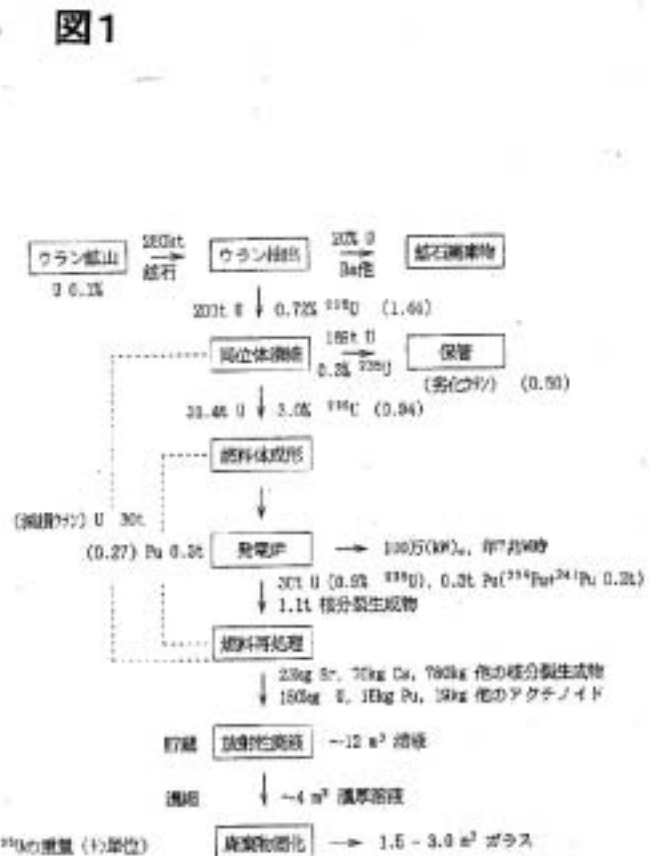


図 9.3 電気出力1GWの軽水炉を1年間運転した際の物質の流れの概念図 (G. R. Choppin, J. Rydberg(1980)による)

(ウラン-235 含有量、0.3%) 170 トンも生じる。プルトニウムが原子炉の燃料に用い難い現状では、劣化ウランを利用できる途はない。ジャンボジェット機の翼の錘または「劣化ウラン弾」としての利用量も大きくはない。

3)再処理 使用済核燃料に含まれる「減損ウラン」(ウラン-235 含有量、0.9%)とプルトニウムが取り出される。強い放射線の存在下でおこなわれるので、放射線分解しにくい化学薬品を用いる単純な分離法を利用せねばならない。

再処理の代表的な技術にピューレックス法があるが、基本的な技術には大きな進歩がみられていない(図2¹⁾)。溶液を用いない方法も開発されているが、実用化には至っていない。

六ヶ所村の再処理工場でもピューレックス法が用いられる。工程の中で最も重要な操作はリン酸トリブチル(TBP)*を利用する溶媒抽出法である。(溶媒抽出法は、水と油を振り混ぜ、両者を接触させて目的物を油の中に移す簡単な操作であるとしてよい。)TBPはドデカン*(石油の成分の一つ)で希釈して用いるが、ウランとプルトニウムが有機溶媒中に抽出され、後に両者を分離する工程に回す。

TBPは放射線分解に強い化学薬品とされているが、放射線分解生成物の発生は避けられず、その影響を減らすために使用済核燃料は少なくとも1年間保存する必要がある。核兵器の材料になるプルトニウムを保管する際の問題も考慮せねばならず、再処理せずに使用済核燃料をそのまま保管する方向に進む方がよいように考えている。

回収される核分裂性物質の質と量は十分ではない。低濃縮ウラン中のウラン 235 の重量は0.94 トンであるが、回収できる減損ウラン中のウラン 235 の重量は0.27 トンであり、核分裂性プルトニウム($^{239}\text{Pu} + ^{241}\text{Pu}$)の重量は約0.2 トンである。双方を合わせて最初の核燃料の量の約50%である。(プルトニウムのみを取ると、約20%に過ぎない。)減損ウランはウラン-236(^{236}U 、2340 万年)などを含んでいるために取扱に特別な配慮を要し、天然ウランが安価な現在では利用しにくい。プルトニウムは同位体の混合物で、プルトニウム-239(^{239}Pu)のみの場合より放射能が強い。核分裂性プルトニウム

図 2

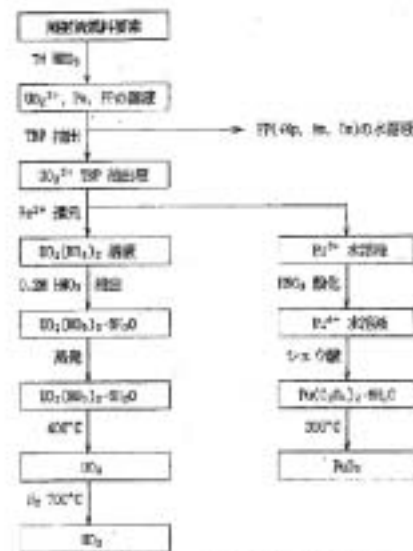


図 3.4 ピューレックス法による使用済核燃料の再処理 (N. Greenwood, A. Ekinshaw(1984)による)

表 1

表 9.5 使用済核燃料中のプルトニウム

核種	壊変	半減期 (年)	存在比** (重量%)	壊変率 (Bq kg ⁻¹)
^{238}Pu	α	2.87	0.007	$1.3_4 \times 10^{12}$
^{239}Pu	α	87.7	1.8	$1.1_1 \times 10^{12}$
^{240}Pu	α	24100	59.3	$1.3_6 \times 10^{12}$
^{241}Pu	α	6560	24.0	$2.0_2 \times 10^{12}$
	(SF $5.7 \times 10^{-6}\%$)			$(1.2 \times 10^{12})^{***}$
$^{241}\text{Pu}^*$	β^-	14.4	11.1	$4.2_5 \times 10^{12}$
^{242}Pu	α	3.73×10^5	3.8	$5.6_2 \times 10^8$
	(SF $5.5 \times 10^{-6}\%$)			(3.1×10^4)

* ^{241}Am (α , 433 年)に崩壊する。Puの分離後1年経過すれば、 $6.64 \times 10^{11}\text{Bq}$ の ^{241}Am が生成している。
 ** 電気出力1GWの軽水炉中で1年間に生成するPuは約0.3tである。
 *** ()内は中性子放出率($\text{s}^{-1} \text{kg}^{-1}$)を示す。

トニウムの比率は約 60%で、²⁴¹Pu(14.35 年)の崩壊によって核分裂性プルトニウムの量は減少する(表 1²⁾)

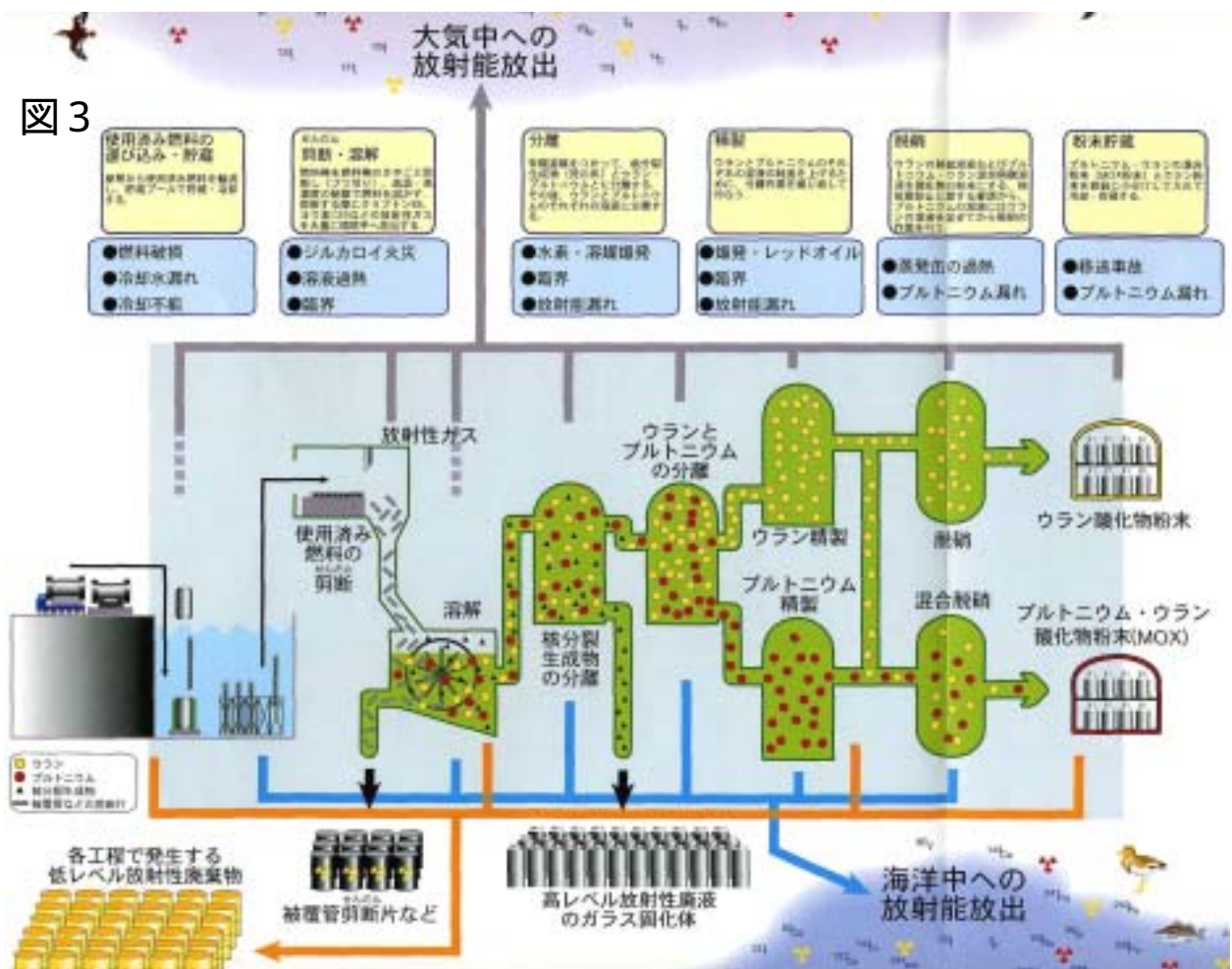
4) 廃棄物処理 再処理をおこなうと、ほとんど全ての放射能が硝酸*の溶液中に入り、溶液の保管は環境への放出の可能性が高いので、これをガラス状に固化して環境に放出されないように安全な場所に保管するのが現在の方針であるが、ガラス固化を実用化するには一層の技術開発が必要であり、保管を實行するには多くの難問を克服せねばならない。

3. 六ヶ所村の再処理施設

茨城県東海村に核燃料処理能力が一日 0.7 トンの再処理工場が旧動燃によって建設され、技術開発に目標を絞って稼働されてきた。六ヶ所村再処理工場は、一日の処理能力が4トンである国内初の商業用の工場である。

実際の再処理の工程を図3⁴⁾に示す。

- 1) 使用済燃料受入れ・貯蔵 原子力発電所から受け入れた使用済燃料はプール中で4年以上保管する。
- 2) せん断・溶解 核燃料を小さく切断して硝酸に溶解し、ジルコニウム合金である被覆管と分離する工程である。この際に揮発性放射能は施設外に放出される可能性がある。クリプトン-85(⁸⁵Kr、10.7年)は全て排出される。
- 3) 分離 TBPをドデカンで希釈した溶液と核燃料の硝酸溶液を接触混合させ、ウランと4価プルトニウムPu(IV)をTBP-ドデカン溶液(有機相)に移す。(核分裂生成物とプルトニウム以外の超ウラン元素は



硝酸溶液中に残る) ウランとプルトニウムを分離するには、還元剤によってプルトニウムを3価プルトニウム、Pu(III)に還元すればよい。還元剤としてこの工場では4価ウランU(IV)を用いる。

4) 精製 ウランとプルトニウムの溶液は、精製を繰り返して純粋な元素を含む溶液にする。この操作は複雑に見えるが、原理的には前の分離の工程とほぼ同様である。

5) 脱硝・製品貯蔵 ウランとプルトニウムの溶液から硝酸が除かれ、酸化物として保管される。この際に、プルトニウムからウランとの混合酸化物(MOX)がつくられる。

6) 酸および溶媒の回収 使用された薬品は、廃棄物の量を減らす目的もあって精製回収される。硝酸の回収は容易であるが、TBP-ドデカン溶媒では放射線分解の影響があり、問題があると予測できる。

4. 再処理にともなう放射能放出

核燃料を溶解して化学操作を加える再処理では、揮発性元素の放射能は施設外に放出されやすい。特に目立つのはクリプトン-85 (^{85}Kr , 10.7年)である。連続運転中の電気出力100万キロワットの原子炉内には28,000兆ベクレルのクリプトン-85が存在する。図4⁵⁾に大気中のクリプトン-85濃度の時間変化を示すが、現在は1.0Bq/m³(ベクレル/立方メートル)まで増加している。原子力発電の規模拡大と再処理の進展によって20世紀末には100Bq/m³に達するとの予測があったが、実際はそうにはなっていない。クリプトンの生体濃縮が起らないことから人体影響は重要視されていない。

六ヶ所村再処理工場から放出されるクリプトン-85による大気中濃度の増加分を概算する。使用済核燃料1トンには280兆ベクレル含まれている。六ヶ所村では、1年に800トンが処理されるから、総量は220,000兆ベクレル含まれる。地球上の大気の体積を4,000,000兆m³とすると、六ヶ所村施設の稼働による大気中濃度の増加分は1年当たり約0.05Bq/m³となる。運転を予定通り長期間続ければ0.75Bq/m³にまで達する。この濃度は大きくはなく、皮膚に対する被曝線量も0.001mSv/年(ミリシーベルト/年)以下と推定されるために重要視されていないが、全人類に被曝を強いる放射能放出はよくないと思う。(なお、この計算値はあくまでも概算値であり、この値より大きいことも十分考えられる。)

アイゼンパッドは次のように書いている⁶⁾。「1970年の ^{85}Kr 濃度は、主として核兵器実験とプルトニウム生産によって約10pCi/m³(注:0.37Bq/m³)に達した。世界的にみたヒトの皮膚線量は次の世紀には約2mrem/年(注:約0.02mSv/年)に達すると推定されているが、この値は1970年代初めの大きすぎる原子力発電容量の増加の予測に基づき、全ての使用済燃料が ^{85}Kr の除去

図4

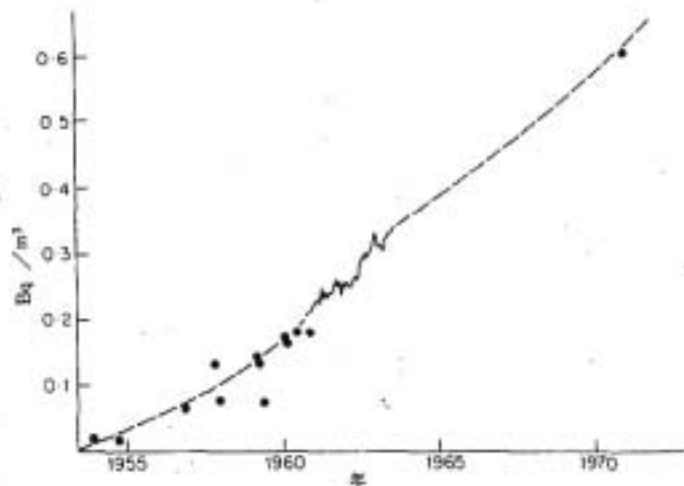


図 36.1 大気中の ^{85}Kr の経年変化

に何の配慮もせず再処理されると仮定した時の予測である。排出ガスから冷却法あるいは他の方法によるクリプトン(注:沸点 153.35、融点 157.20)の除去は可能である。環境保護庁(EPA)は、1983年以後に建設される全ての再処理工場からのクリプトンの放出を電気出力 100 万キロワットあたり 500kCi (注:19000 兆 Bq) から 50kCi (1900 兆 Bq) に減少させるように要求している。」(1987 年刊、意識)環境保護庁が排出量の 90%削減を考えていたと認められる。因みに、日本の環境庁は放射線に関わる環境問題を取り扱っていない。

トリチウム (^3H , 12.3 年) は主として水の形で排水中に放出されるが、水素ガスとしての放出の可能性もある。ルテニウムの高次酸化物である四酸化ルテニウム (RuO_4) は硝酸溶液中でたやすく生成し、揮発しやすい。ルテニウム ^{106}Ru (1.01 年) がイギリスの再処理工場付近で採取された海藻中から検出されている。ヨウ素は揮発性が高いために、放出されやすい。長寿命のヨウ素 ^{129}I (1600 万年) による汚染が北海に広がっていることはよく知られている。イギリスとフランスの再処理工場から放出されたと考えられる。日本でも、東海村再処理工場周辺で採取された環境試料から検出されている。

5. 再処理にともなう安全性の問題

1) 臨界事故 再処理にともなう最も重大な事故であるが、厳重な規制がおこなわれているはずである。油断は禁物であり、念には念を入れた慎重な管理が必要である。

2) 放射線分解 放射線が物質中に入射すると、エネルギーが失われ、化学変化が起こる。放射線的作用によって励起化学種が生成し、さらに二次的な反応が起こる。水では、二次反応生成物として水素、過酸化水素、酸素などが生じる。他の物質ではさらに複雑な反応が起こるが、多くの場合に物質の分解へと導かれる。時には、分解した生成物が反応して大きな分子が生じることもある。再処理においては、放射能の強い「分離」の過程で問題になる。使用した化学薬品の品質の劣化には注意せねばならない。

3) 化学薬品に関わる問題 放射線による損傷以外に用いられる硝酸などの化学薬品自体の反応には気をつけねばならない。分離の際に用いる硝酸は反応性の大きい化学薬品であり、特に注意すべきである。リン酸トリブチルは比較的分解しやすく、分離を不完全にする恐れがある。ドデカンの可燃性も忘れてはいけない。還元剤として用いられることもあるヒドラジンは、爆発的に分解する可能性もあり、取扱に注意すべき化合物である。

6. おわりに

六ヶ所村再処理工場はほぼ完成したといわれ、「注水テスト」、「化学テスト」が進められているが、その内容についての公開は十分ではないと思う。水もれあるいは化学薬品のもれについての情報が明らかにされていることは評価できるが、一層の情報公開を望みたい。

私は、2003年3月24日から25日まで東北町において開催された「燃料サイクル第2回国際ワークショップ」(日本原子力学会主催)に出席した。アメリカ、イギリス、フランス、オランダからの出席者が居たため、それなりに意義のある会議であった。核燃料サイクルに関する意見は様々であり、硬直化した方針に捕らわれざるを得ない国内からの発表は精彩を欠く場合もあった。日本も原点に立ち返り、再処理をおこなうべきかどうかから議論すべきである。「資源小国の日本ではプルトニウムの利用が不可欠である。云々」といっていてよいのであろうか。

25 日午後には六ヶ所村施設の見学会があった。見学は2 班に分かれておこなわれたが、再処理工場についてはガラス越しに中央制御室を見ただけであった。私の入った外国人参加者を含まない班では、専門知識が乏しい広報の係員が説明をただけで、用いる硝酸の濃度のような簡単なことを聴いてもよい顔はしなかった。専門知識のあるグループに対する対応としては理解しがたい。二言目には「核物質保護」、「テロの防止」あるいは「企業秘密」を持ち出して公開できるはずの情報も明らかにしないのは好ましい態度ではない。

年間 800 トンの処理能力では国内の軽水炉がフル稼働した際に発生する 1000 トン以上の核燃料を処理しきれない。未処理のまま残っている燃料もあり、この工場が予定通り運転しても使用済燃料は蓄積し続けることになる。

核燃料サイクルは再検討されねばならない。

「学識経験者」ではなく、真の専門家を集めて真摯な議論を集中的に進めればよい。必要な経費は、再処理施設の建設のために要する人件費費に比べれば問題にならない額である。問題はそのような試みをする気があるか、あるいは適当な人材を集められるかである。

日本の再処理は何処へ行くのか私は、再処理工場の運転は差し控えるべきだと考えている。「今からでも遅くはない。」再処理工場の建設が壮大な無駄使いに終わることを望みたい。

参考資料

- 1) 古川路明「放射化学」、朝倉書店(1994) p.167
- 2) 古川路明「放射化学」、朝倉書店(1994) p.168
- 3) 「六ヶ所再処理工場の概要」p.7 - 8
- 4) 真淵久夫、富田功、古川路明、高木仁三郎、「元素の事典」、朝倉書店(1994) p.133
- 5) M.Eisenbud, "Environmental Radioactivity", Academic Press(1987) p.268

【付録 1】放射線化学

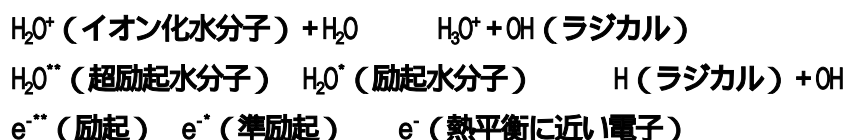
放射線が物質中に入射すると、その中で化学変化が起こる。このような現象を取り扱う化学の分野を「放射線化学」という。放射線による物質中でのイオン化および励起によって励起された化学種が生成し、それがさらに二次的な反応をおこなう。放射線の通過する道筋の近くの分子にエネルギーが与えられる。エネルギー付与の直後には、経路の近くに分子の陽イオンと電子が、やや離れた位置には電子励起された分子とそれから生ずるラジカルが不均一に生成する。このような反応活性種の集まりをスーパー(spur)とよぶ。

放射線化学では、エネルギー損失の程度を表すために「線エネルギー付与(LET)」という用語を用い、eV/nm などの単位で表す。また、特有の術語として「G 値」があり、「100eV のエネルギーが吸収された際の生成分子数」と定義している。

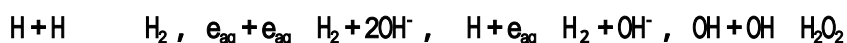
水の放射線化学の要点を以下で説明する。

1) 水の放射線分解 水の放射線分解は放射線化学を考える際の基礎である。放射線のエネルギーが与えられて水分子が分解し、最終生成物にいたるまでの過程をふつうは三つに分けて取り扱う。第一は

物理的過程（ 10^{-15} 秒）であり、水分子のイオン化と直接の電子励起が起こり、スパーが形成される。高エネルギー状態にある化学種は、次の物理化学的過程（ 10^{-14} - 10^{-12} 秒）において分解、発光などによりエネルギーを散逸させ、熱平衡に達する。その過程の概略を示す。



これに続く化学的過程（ 10^{-10} ~ 10^{-6} 秒）では、 e^- は水と作用して e_{aq}^- （水和電子）となり、 H および OH ラジカルとともに分子状の二次生成物（ H_2 , H_2O_2 ）の生成と再結合による消滅を繰り返しながら拡散し、系内に広く分布する。



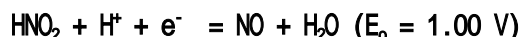
このような生成物はそれ同士で相互作用をするか、反応性がある溶質を含む溶液では溶質と反応しながら最終生成物が生成する。

2) 鉄線量計 希硫酸中の Fe^{2+} は放射線照射により Fe^{3+} に酸化される。0.4M H_2SO_4 溶液中の G 値は 15.5 であるので、溶液中の Fe^{2+} の濃度変化から吸収線量を決定できる。これを鉄線量計という。

（主として、古川路明、「放射化学」による。）

【付録 2】関連する化学薬品

1) 硝酸 HNO_3 (分子量 63.01) およびその水溶液を指す。無色、吸湿性の液体。空気中で白煙を生じる。比重 1.50、融点 -42 、沸点 82.6 。24.2 における蒸気圧は 60mmHg に達する。水と任意に混ぜり、水溶液は強い酸である。水と沸点 120.7 の共沸混合物をつくる。その濃度は 63%、比重は 1.40 である。光や熱によって分解して褐色の二酸化窒素を生じる（ $2\text{HNO}_3 \rightarrow 2\text{NO}_2 + \text{H}_2\text{O} + 1/2\text{O}_2$ ）。 $\text{HNO}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{HNO}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ の水和物が知られている。工業的には、白金、白金-ロジウム、酸化鉄-酸化コバルトなどを触媒として用いて、アンモニアの空気酸化によってつくられる。製品の HNO_3 濃度は 55~70% であり、比重は濃度 70% の場合に 1.41、60% には 1.36 となる。強力な酸化剤で多くの金属を溶かすが、金、白金、ロジウムおよびイリジウムには作用しない。アルミニウム、クロムおよび鉄は希硝酸には溶けるが、濃硝酸には不動態化物をつくって溶けにくくなる。銅、銀および鉛では、硝酸が還元されて一酸化窒素を生じる。



この反応で生じる一酸化窒素がただちに空気酸化によって二酸化窒素となるので、褐色の煙が発生する。 Zn 、 V^{2+} 、 Cr^{2+} によって還元されると、硝酸濃度などの条件によって一酸化二窒素、ヒドロキシンアミン、アンモニアなどを生じる。多くの非金属に対しても酸化性を示し、例えば硫黄、リンは熱濃硝酸によって酸化されて硫酸、リン酸を生じる。濃硝酸単独で、または濃硫酸とともに有機物に作用して、酸化、ニトロ化、エステル化などの反応を行う。工業化ならびに肥料用の硝安、染料、化学繊維、爆薬、有機合成中間体、各種の硝酸塩などの製造、金属の洗浄などに用いられる。皮膚や粘膜に付着すると火傷あるいは腐食を起こす。蒸気の継続的な吸入は呼吸器系に慢性的な炎症を起こす。濃硝酸にさらに二酸化窒素を吸収させたものは発煙硝酸とよばれる。

2) リン酸トリブチル（略称、TBP）、 $\text{C}_{12}\text{H}_{27}\text{O}_4\text{P}$ 、分子量 266.32。 $(\text{C}_4\text{H}_9\text{O})_3\text{P}=\text{O}$ 。塩化ホスホリル

にナトリウムブトキシドまたはブタノールとピリジンを作用させてつくる。無色の液体。沸点 289 。比重 0.9766、水に溶けにくく、エタノール、エーテルと混ざりあう。ホスホルリ基の酸素 (>P=O) は負に分極し、ホスフィンオキシド類 (例: TOPO) と同様に金属イオンや錯体に配位し、錯体を有機溶媒に溶けやすくする効果がある。例えば、6 価ウラン () をリン酸ジアルキルで抽出するとき、リン酸トリブチルを併用すると、それぞれ単独で用いるときに比べて数百倍以上の抽出効率を得られる (協同効果)。アニオン性の抽出試薬と組み合わせ、ランタノイドとアクチノイド金属の溶媒抽出に広く用いられる。

3) ヒドラジン N_2H_4 、分子量 32.03。 H_2NNH_2 。ヒドラジン水和物を水酸化ナトリウムとともに穏やかに加熱してつくる。無色の油状液体で、空気中で発煙する。アンモニア様の臭気がある。融点 1.4 、沸点 113.5 。比重 1.0036。空気中では 180 でアンモニアと窒素に分解する。発火点 52 、還元性が強い。硫黄、リンは溶けて反応する。きわめて弱い二酸塩基である。多くの無機物を溶かす。有毒で、目、鼻あるいはのどを刺激し、皮膚炎を起こす。毒性は、ラットについて LD_{50} (腹腔内注射) が 76mg/kg とされている。

4) ドデカン $C_{12}H_{26}$ 、分子量 170.34。 $CH_3(CH_2)_{10}CH_3$ 。石油中に存在し、灯油の中に含まれている。無色の可燃性液体。融点 -9.6 、沸点 214.5 。比重 0.7511、発熱量 47.827kJ/mol (25)。水に溶けにくく、有機溶媒にはよく解ける。

純粋なものは臭化ヘキシルにナトリウムを作用させるか、またはラウリン酸を 200~250 でヨウ化水素酸と赤リンとにより還元してつくる。

(主として、「化学辞典」(東京化学同人)による。)